

## Szakmai zárójelentés az „Ultrarövid infravörös és távoli infravörös (THz-es) fényimpulzusok előállítása és alkalmazása” című, T 038372 számú OTKA projekthez

A projekt eredetileg kért időtartama: 2002 február 1. – 2004. december 31. Az időtartam meghosszabbításra került 2005. december 31-ig.

A projekt OTKA támogatása a teljes időtartam alatt: 6.000 eFt

### Bevezetés

A projekt célja olyan eszközök kutatása és fejlesztése volt, amelyek ultrarövid impulzusokat állítanak elő a közeli és a távoli infravörös spektrum tartományon. A közeli infravörös (1-1,5  $\mu\text{m}$  hullámhosszú) impulzusokat az ultragyors kommunikációs eszközök, és az ezekben alkalmazott anyagok kutatásában és fejlesztésében lehet alkalmazni. A távoli infravörös (újabban THz-esnek nevezett) impulzusok azért bírnak nagy jelentőséggel, mert lehetővé teszik a kisenergiájú gerjesztések nagy időfelbontású dinamikájának vizsgálatát a szilárdtest fizika, a kémia és a biológia területén. A THz-es impulzusok lehetséges fontos alkalmazásai között vannak olyanok, amelyek nem igényelnek nagy időbeli feloldást, ugyanakkor megvalósításukhoz **nagy THz-es impulzus energiára vagy átlagteljesítményre van szükség.** Ilyen alkalmazás például a spektrálisan feloldott képalkotás, amit a biztonságtechnikában lehet felhasználni (ruha alatt vagy csomagban, borítékban elhelyezett fegyver, robbanószer vagy kábítószer felismerése). **A tudományos kutatás lehetőségeit a THz-es ESR döntő mértékben növelheti majd.** Ehhez szintén nagy teljesítményű (W) THz-es forrásra lesz szükség.

A munkatervnek megfelelően, mindkét tartomány esetén, a széles körben elterjedt Ti:zafír lézerek fényimpulzusainak nemlineáris optikai frekvenciakonverziójával (optikai parametrikus oszcillátor (OPO), illetve optikai egyenirányítás segítségével) állítottuk elő az impulzusokat a kívánt spektrális tartományon. Az elvégzett kutatások azonban nem teljesen a kutatás munkatervének (szerződés 2. sz. melléklete) megfelelőek voltak. A kutatás súlypontja eltolódott a THz-es impulzusok felé. Ez nagyobb részben tudatos volt, de a külső körülmények is ebbe az irányba hatottak. Az utóbbi években ugyanis az optikai parametrikus erősítők térhódításával az OPO-k iránti érdeklődés nagyon visszaesett, ugyanakkor a THz-es tudomány gyors fejlődése igényli a hatékony THz-es impulzusgenerálást. A súlyponteltolódás konkrétan azt jelenti, hogy a PPLN OPO-t megterveztük, de eddig nem építettük meg, ugyanakkor a munkatervben szereplő THz-es impulzusgenerálási elrendezésen kívül még másik kettő elrendezést is kifejlesztettünk. Ezenkívül nem OPO impulzusokkal mértük félvezetők dinamikáját, hanem a THz-es impulzusok előállítása során figyeltünk meg fonon dinamikát. Továbbá olyan kísérleteket kezdtünk el, amelyeknek célja biológiai minta (bakterio-rhodopszin) által kibocsátott THz-es sugárzás megfigyelése, és ebből a mintában lejátszódó töltésmozgás meghatározása. Összességében tehát a tervezettől kissé eltérő, de annál lényegesen több kutatást végeztünk. Azt, hogy **helyes volt a kutatás súlypontjának eltolása a THz-es tudomány irányába mutatja az, hogy a tervezettnél csaknem négyszer több (!) (három helyett 11) referált folyóiratcikket írtunk a projektben elért kutatási eredményekről.**

## Legfontosabb eredmények:

### 1. Minden eddiginél rövidebb (12 fs időtartamú) impulzusokat előállító OPO tervezése

Korábban kidolgozott számítógépes modellel végzett átfogó számításokkal megmutattuk, hogy nemlineáris kristályként periodikusan polarizált LiNbO<sub>3</sub>-ot (PPLN) tartalmazó OPO-val minden eddiginél rövidebb (<12 fs) időtartamú fényimpulzusokat lehet előállítani az optikai információátvitelben fontos, 1,3 μm hullámhossz tartományon. Meghatároztuk a kísérleti megvalósítás szempontjából fontos összes paramétert: a PPLN periódusát, az optimális pumpáló hullámhosszat, a szükséges csoportkésés-diszperzió kompenzálás mértékét, az OPO rezonátorhosszában tolerálható eltérést az optimális értéktől, stb..

### 2. THz-es impulzusok előállítása

#### 2.1. Döntött impulzusfrontú gerjesztés

A munkatervnek megfelelően megterveztünk egy általunk javasolt új elven, a pumpáló impulzus intenzitásfrontjának dőlésén alapuló, ultrarövid THz-es impulzusok előállítására alkalmas elrendezést. Ahhoz, hogy az optikai egyenirányítás hatékony legyen (más nemlineáris frekvencia átalakító folyamatokhoz hasonlóan) szükséges, hogy teljesüljön egy fázisillesztési feltétel. Optikai egyenirányítás esetén a fázisillesztés feltétele akkor teljesül, ha a pumpáló impulzusok csoportsebessége megegyezik a keltett THz-es sugárzás fázissebességével, vagyis:

$$v_{cs}^p = v_f^{THz}. \quad (1)$$

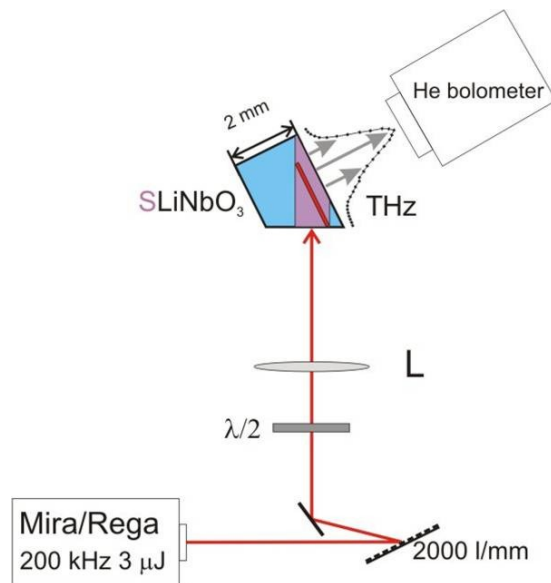
A LiNbO<sub>3</sub> kristály nemlineáris együtthatója kiemelkedően nagy [7], így fázisillesztés teljesülése esetén nagy hatásokkal lehetne használni THz-es impulzusok optikai egyenirányítással történő előállítására. Jól ismert azonban, hogy a THz-es törésmutatója több mint kétszerese a láthatóbeli csoport-törésmutatónak, vagyis a fázisillesztés extrém módon nem teljesül. Ezen a problémán segít a pumpáló impulzus frontjának  $\gamma$  szöggel történő döntése. Ekkor ugyanis a pumpáló impulzusfrontnak az impulzusfront által keltett, és arra merőlegesen terjedő THz-es sugárzás terjedési irányával megegyező komponense számít [1], vagyis (1) helyett a következő egyenletnek kell fennállnia:

$$v_{cs}^p \cdot \cos \gamma = v_f^{THz}. \quad (2)$$

Ez az egyenlet pedig a  $\gamma$  szög megfelelő megválasztása esetén teljesül. Az impulzusfront döntését például az impulzusok optikai rácson történő diffrakciójával lehet elérni. A diffraktált nyaláb viszont szögdiszperzióval rendelkezik.

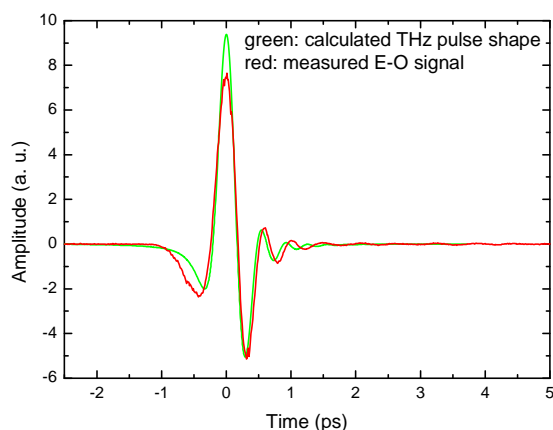
Kidolgoztunk egy geometriai optikai modellt [3], amellyel szögdiszperzióval rendelkező optikai elrendezésekben számolható ultrarövid impulzusok időbeli lefutásának a megváltozása. Ilyen számolások szerint az 1. ábrán látható elrendezésben 50 fs-nál hosszabb impulzusok időbeli torzulása nem számottevő [3]. A LiNbO<sub>3</sub> kristály abszorpciója a THz-es tartományon jelentősen függ a Li/Nb aránytól és a fotorefrakció csökkentése érdekében alkalmazott Mg adalék koncentrációjától (részletesebben lásd később). A kísérleteinkben közel sztöchiometrikus, 0,6 mol% Mg adalékolású kristályt alkalmaztunk, ugyanis méréseink szerint ennek a legkisebb a THz-es abszorpciója. A LiNbO<sub>3</sub> kristály két felülete egymással 64° szöget zár be annak érdekében, hogy a pumpáló és a keltett THz-es nyaláb egyaránt merőlegesen haladjon át az egyik, illetve a másik felületen.

150 fs időtartamú, 3 μJ energiájú pumpáló impulzusokat alkalmazva szobahőmérsékleten 100 pJ, 77 K hőmérsékleten pedig 400 pJ energiájú 2THz átlagos frekvenciájú impulzusokat tudunk előállítani [2,7].



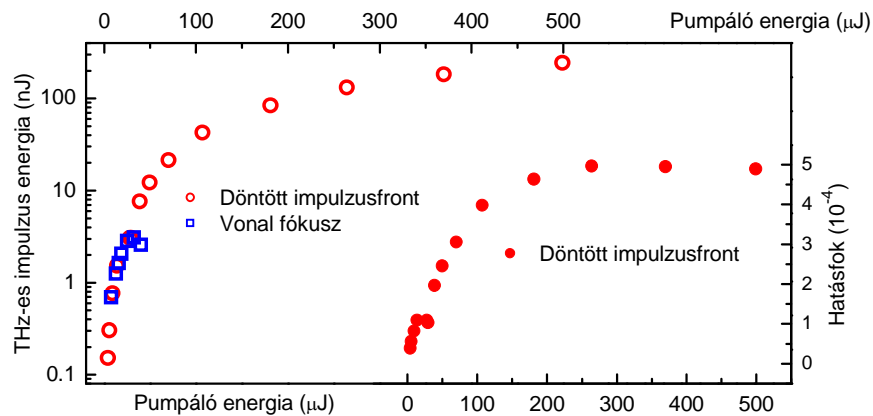
1. ábra: THz-es impulzusok döntött pumpáló impulzusfronttal történő gerjesztésére használt elrendezés.

A kb. 0,5 ps időtartamú THz-es impulzus lényegében egyetlen periódusból állt (lásd 2. ábra).



2. ábra: A döntött impulzusfrontú gerjesztéssel keltett THz-es impulzus elektromos térerősségének mért (piros) és szimulált (zöld) időbeli lefutása.

Később megmutattuk, hogy döntött impulzusfrontú gerjesztést alkalmazva a THz-es impulzusok energiája egyszerűen növelhető a gerjesztő impulzusok energiájának és nyalábkeresztmetszetének egyidejű növelésével. Ilyen módon, 0,5 mJ energiájú pumpáló lézerimpulzusokat alkalmazva 260 nJ energiájú THz-es impulzusokat tudtunk előállítani [11] szobahőmérsékleten (lásd 3. ábra). Az energia hatásfok elérte a 0,5 ezrelék értéket. Ez azt jelenti (mivel a THz-es impulzusok frekvenciája 200-szor kisebb, mint a pumpálóé), hogy a kvantumhatásfok 10 % volt. Ez kimagaslóan jó érték. **Az általunk elért THz-es impulzusenergia ezerszerese (!) a nemlineáris anyagként a THz-es impulzusok előállítására általánosan használt ZnTe kristályt, és szintén 0,5 mJ energiájú pumpáló impulzusokat alkalmazó kísérletekben előállított THz-es impulzusok energiájának.** Ez a nagy energia, és az ennek megfelelő nagy (néhány MV/cm) elektromos térerősség számos alkalmazást tesz majd lehetővé.



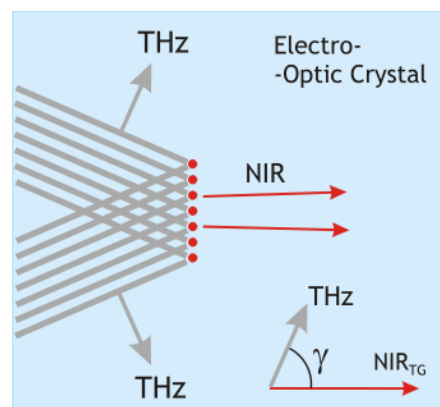
3. ábra: Döntött impulzusfrontú gerjesztéssel előállított THz-es impulzusok energiája, és az optikai egyenirányítás energia hatásfoka a gerjesztő energia függvényében.

## 2.2. Vonallá fókuszált nyalábbal történő gerjesztés

Megmutattuk [6], hogy néhány  $\mu\text{J}$  energiájú pumpáló impulzusok alkalmazása esetén a döntött impulzusfrontú gerjesztéssel megegyező hatásfokkal lehet THz-es impulzusokat előállítani egy egyszerűbb elrendezéssel. A pumpáló nyalábot egyszerűen egy hengerlencsével kell a nemlineáris kristályba fókuszálni. Nagyobb gerjesztő energiák esetén azonban ezzel az egyszerű elrendezéssel (lásd a kék négyszögeket a 3. ábrán) nem lehet olyan nagy THz-es impulzusenergiát elérni, mint a döntött impulzusfrontú gerjesztéssel [11]. Ennek többek között az az oka, hogy a kis nyalábméret miatt az intenzitás már néhányszor  $10 \mu\text{J}$  energia esetén is eléri a kristály roncsolási küszöb értékét.

## 2.3. Két nyalábbal történő gerjesztés

A döntött impulzusfrontú és a vonal alakú gerjesztés alkalmazásával lényegében egyetlen periódusból álló, és így szükségképpen széles spektrális eloszlású THz-es impulzusokat lehet előállítani. Kidolgoztunk egy egyszerű eljárást hosszabb időtartamú (néhány ps) és keskeny spektrumú THz-es impulzusok előállítására. Ha két ultrarövid impulzus kis szögben találkozik, akkor az interferenciájuk egy csíkrendszert hoz létre.

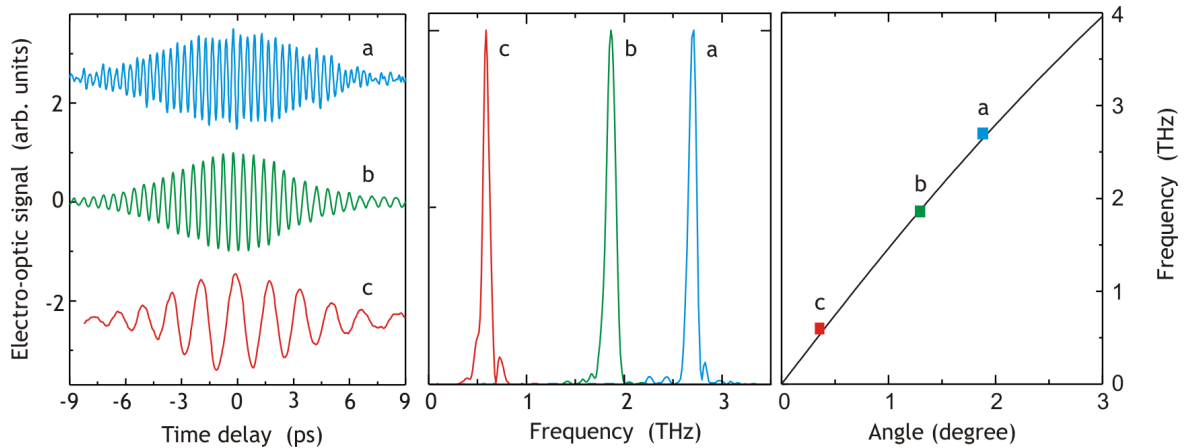


4. ábra: THz-es impulzus keltése két pumpáló nyaláb interferenciájával.

Miközben ez a csíkrendszer a nemlineáris kristályban terjed (lásd 4. ábra) két ferdén oldalirányban terjedő sík fázisfrontú THz-es impulzus jön létre. Ezek az impulzusok annyi periódust tartalmaznak, amennyit a csíkrendszer. A THz-es impulzus periódusideje a gerjesztő csíkrendszer térbeli periódusával arányos, ez pedig az interferáló pumpáló nyalábok

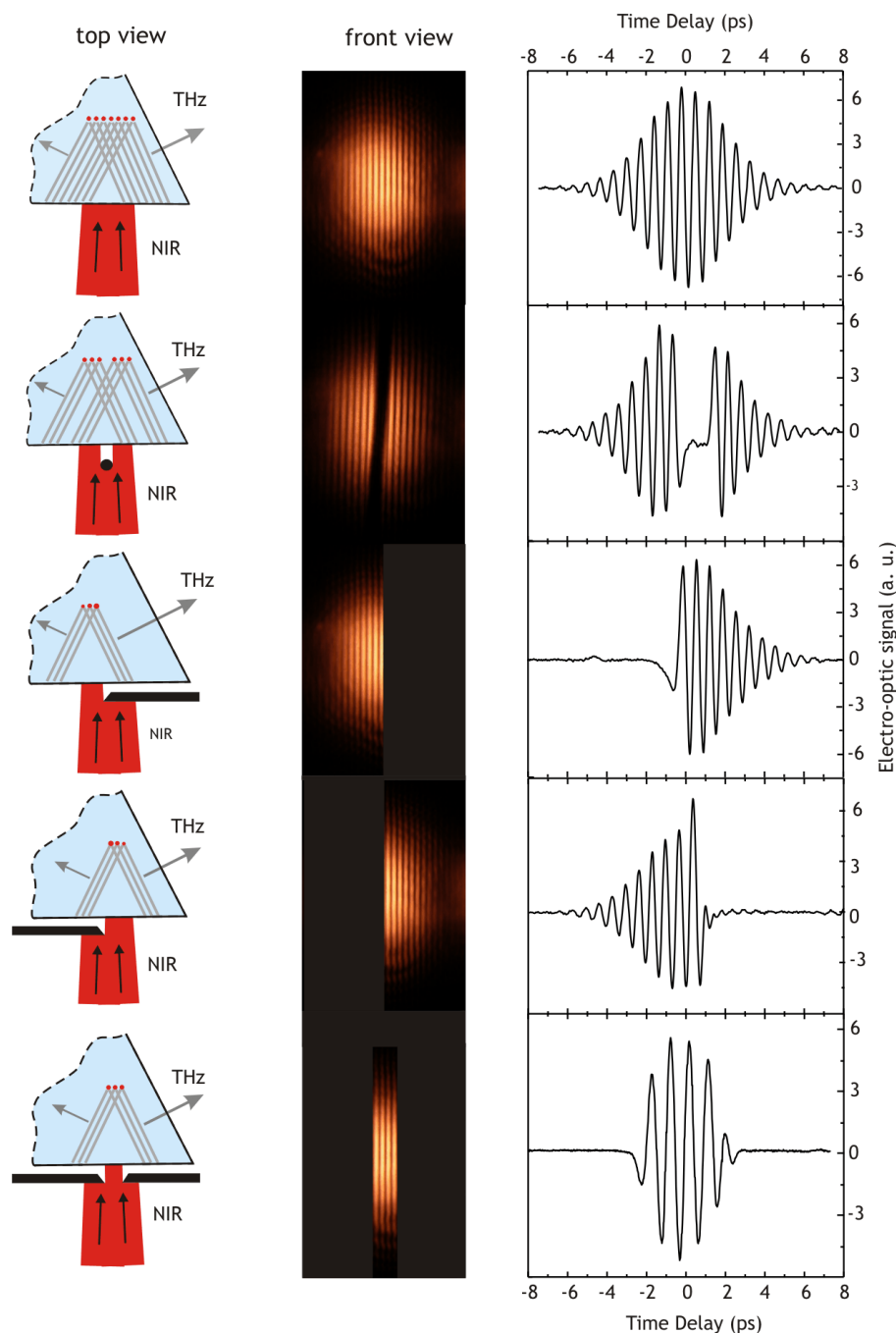
közötti  $\alpha$  szögtől függ. Azaz két pumpáló nyalábot alkalmazva, és az általuk bezárt szöget változtatva, **változtatható frekvenciájú THz-es impulzusokat lehet előállítani**. A THz-es impulzusok időtartama az  $\alpha$  szögön kívül a nyalábok méretétől függ.

Pumpálásra egy Ti:zafír lézerrendszer 150 fs időtartamú, 3  $\mu$ J energiájú impulzusait alkalmazva 1.8 pJ energiájú hangolható THz-es impulzusokat állítottunk elő [5]. Ez pontosan akkora energia, mint amellyel azok a THz-es impulzusok rendelkeztek, amelyeket PPLN segítségével állítottak elő, az általunk használttal megegyező pumpáló impulzusokat alkalmazva. Az általunk javasolt és megvalósított elrendezés nagy előnye, hogy nagyon **egyszerűen lehet hangolni a THz-es impulzusok frekvenciáját**. Az 5. ábra mutatja a THz-es impulzusok hangolhatóságát.



5. ábra: Balról jobbra: A két pumpáló nyalábbal keltett THz-es impulzusok elektromos térerősségének időbeli lefutása három különböző  $\alpha$  szög esetén, az ezekből számolt spektrum, és a spektrum maximuma mint  $\alpha$  függvénye.

A csíkrendszer térbeli intenzitás eloszlása és a keltett THz-es impulzusok időbeli lefutása közötti megfeleltetés nem csak a frekvencia változtatását teszi lehetővé, hanem azt is, hogy a THz-es impulzusok időbeli lefutását szinte tetszés szerint változtassuk a pumpáló nyalábok térbeli intenzitás-eloszlásával. Erre mutat néhány példát a 6. ábra.



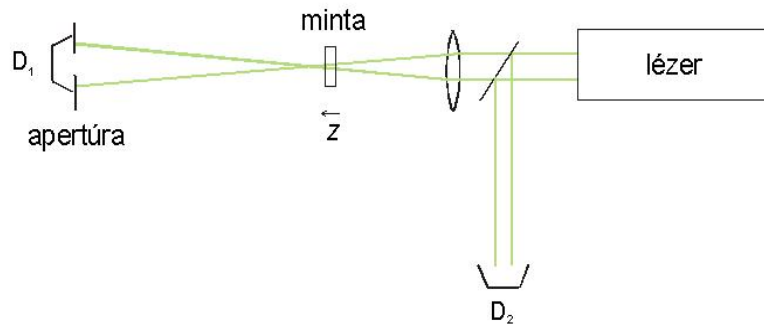
6. ábra: Balról jobbra: A gerjesztő nyalábok intenzitás-eloszlásának megváltoztatására használt elrendezés, a mért CCD kamerával detektált intenzitás-eloszlás (fehér a legintenzívebb rész), és az előállított THz-es impulzus mért időbeli lefutása.

### 3. LiNbO<sub>3</sub> tulajdonságainak vizsgálata

#### 3.1. Fotorefrakció és nemlineáris abszorpció mérése

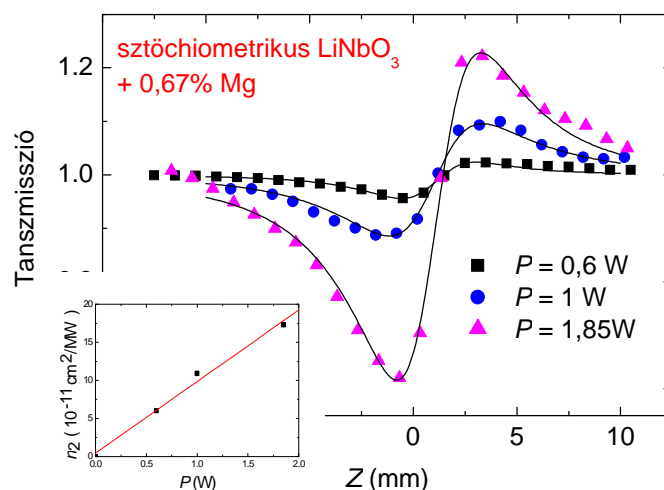
A nemlineáris optikai frekvencia-átalakítók, így az OPO-k tervezésénél is lényeges szempont a nyalábok stabilitása. A LiNbO<sub>3</sub> nagyintenzitású frekvencia-átalakítóként történő alkalmazása során az anyagnak olyan hátrányos nemlineáris tulajdonságaival kell szembenéznünk, amely törésmutató változásban nyilvánul meg és a nyalábok torzulásához vezet. Ezek közül legfontosabb a fotorefrakció, vagyis a törésmutató intenzív fény hatására történő megváltozása. Ez a jelenség adalékolatlan LiNbO<sub>3</sub> esetén a nyaláb erőteljes anizotrop

torzulását eredményezi már kis ( $\text{W}/\text{cm}^2$ ) intenzitás esetén is. Ezen probléma orvoslása céljából az anyagot Mg-mal adalékolják, aminek a látható tartományban fotorefrakciót mérséklő hatása van. A fotorefrakciót befolyásoló másik tényező a kristály sztöchiometriája (Li/Nb arány).



7. ábra: Z-scan elrendezés vázlata.

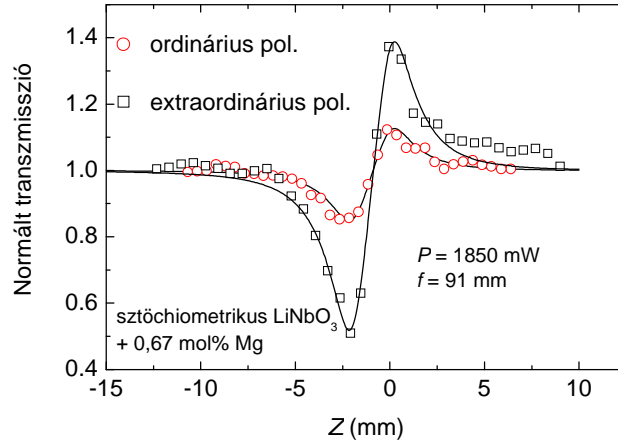
A  $\text{LiNbO}_3$  alapú nemlineáris optikai frekvencia-átalakítók fejlesztéséhez néhány olyan alapkutatás jellegű vizsgálatot végeztünk el, melyek elsődleges fontosságúak a legmegfelelőbb összetételű kristály kiválasztásához. 2001-ben összeállítottuk a vizsgálat alapjául szolgáló kísérleti elrendezést (7. ábra), ami egy 1990 óta létező (ún. Z-scan) eljárásnak a továbbfejlesztése. Az elrendezés alkalmas a nemlineáris törésmutató, és nemlineáris abszorpciós együttható nagy érzékenységgel történő meghatározására. A Z-scan elmélet szakirodalmában erősen korlátozott alkalmazhatósági körét, mind kísérleti, mind pedig elméleti vonalon tovább szélesítettük, ami az alkalmazások szempontjából is fontos. A Z-scan méréseket a kristályszeleten áthaladó nyaláb intenzitás-eloszlásának részletes vizsgálatával, és a nemlineáris effektus időbeli vizsgálatával kiegészítve **lehetővé vált a nemlinearitás eredetének tisztázása [10]. Ezáltal külön tudtuk választani azokat az eseteket, amikor a fotorefrakció, illetve amikor a termo-optikai nemlinearitás volt a domináns. Megmutattuk, hogy bizonyos Mg küszöbkoncentráció felett a fotorefrakció praktikusán zérus, továbbá, hogy ez a küszöbérték függ a sztöchiometriától. Megmutattuk, hogy a küszöb feletti, nem fotorefraktív minták esetében tisztán a termo-optikai nemlinearitás felelős a törésmutató változásért.**



8. ábra: A teljesítménnyel arányos nemlineáris törésmutató az abszorpció nemlinearitására utal.

Különböző intenzitások mellett elvégzett mérésekkel (8. ábra) azt is demonstráltuk, hogy az anyag melegedéséért **a lineáris és a nemlineáris abszorpció egyaránt felelős, és ez utóbbi a domináns [4]. A termo-optikai effektus sajátosságait figyelembevevő elméletet**

**dolgoztunk ki [9]** azzal a céllal, hogy a méréseket ezzel kiértékelve a lineáris és nemlineáris abszorpciós együtthatókat meghatározhassuk, melyeknek igen nagy érzékenységgel történő mérésére módszerünk egyedülálló.  $\text{MW}/\text{cm}^2$ -es lézerintenzitás mellett ugyanis 2 mm-es vastagságú mintát használva más módszerrel nem lehetséges az  $\alpha = 0,6 \text{ 1/m}$  és  $\beta = 2,9 \times 10^{-9} \text{ m/W}$  értékű abszorpciós együtthatók pontos mérése.

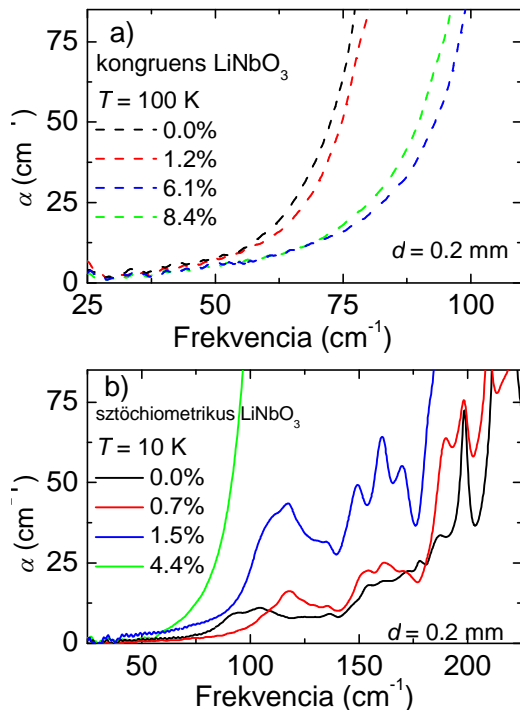


9. ábra: A görbék demonstrálják a nemlineáris abszorpció anizotrópiáját.

Megmutattuk továbbá, hogy a  $\text{LiNbO}_3$  nemlineáris abszorpciója anizotrop (9. ábra) [10].

### 3.2. Törésmutató és abszorpciós együttható mérése a THz-es tartományon

Annak érdekében, hogy a lehető legjobb hatásfokú hangolható THz-es sugárforrást előállítsuk, a különböző összetételű (szttöchiometriájú illetve Mg koncentrációjú)  $\text{LiNbO}_3$  kristályok törésmutatójának és abszorpciójának frekvenciafüggését lényeges ismernünk a THz-es tartományon. A törésmutató ismeretére a fázisillesztés megvalósításához, az abszorpció ismeretére pedig a veszteség minimalizálása miatt van szükség. Részletesen



10. ábra: Sztöchiometrikus és kongruens  $\text{LiNbO}_3$  abszorpciós együtthatója a THz-es tartományon.

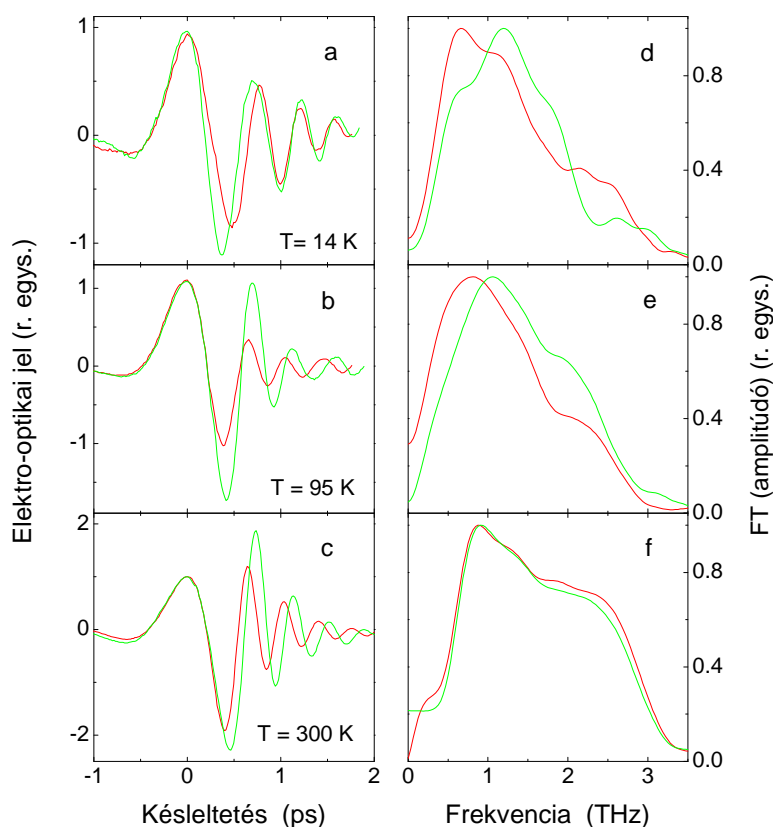
vizsgáltuk a törésmutatót és az abszorpciós együtthatót a 20-200  $\text{cm}^{-1}$ -es frekvencia-tartományon. Adalékolatlan illetve Mg-mal különböző koncentrációkban adalékolt szttöchiometrikus és kongruens mintákat vizsgáltunk, és hasonlítottunk össze 10, 100, 200 és 300 K hőmérsékleten [12]. A mérésekre a stuttgarti Max-Planck Institut für Festkörperforschunggal való együttműködés keretein belül került sor. **Méréseink kiértékelésével megmutattuk, hogy az adalékolatlan minták közül minden frekvencián és hőmérsékleten a (más szempontokból is kedvezőbb) szttöchiometrikus  $\text{LiNbO}_3$  lényegesen kisebb abszorpciós együtthatóval, és kisebb törésmutatóval rendelkezik, mint a kongruens. Továbbá az alkalmazások szempontjából különösen előremutató eredmény, hogy mind a kongruens, mind a szttöchiometrikus összetétel esetén a fotorefrakciós küszöbhez legközelebb eső**



**Mg koncentrációjú összetétel esetén minimális az abszorpció együttható (10. a, b. ábra), kongruens összetétel esetén pedig a törésmutató is. Ezenkívül megmutattuk, hogy a Mg küszöbkonzentrációhoz közeli sztöchiometrikus és kongruens összetétel közül a sztöchiometrikusnak lényegesen kisebb az abszorpció együtthatója valamennyi hőmérsékleten. A fenti eredmények alapján tehát a küszöbkonzentrációt legjobban megközelítő Mg koncentrációjú sztöchiometrikus kristály a legperspektivikusabb a THz-es sugárzás előállítására.**

#### 4. Kényszerített fonon bomlás LiNbO<sub>3</sub>-ban

Megfigyeltük, hogy amikor nagyenergiájú THz-es impulzusokat keltünk, a pumpálás növelésével (amivel együtt jár a THz-es energia növekedése) a hatásfok telítődik [2]. Ez látható a 3. ábrán is. E jelenség okának felderítése érdekében mértük a keltett THz-es impulzusok időbeli lefutását a hőmérsékletet és a THz-es impulzus energiáját változtatva. Ezeknek a mérési eredményeknek egy részét mutatja a 11. ábra.



11. ábra: THz-es impulzusok időbeli lefutása (bal oszlop) és spektruma (jobb oszlop) három különböző hőmérsékleten egységnyi pumpáló energia (zöld görbék) és kétszer nagyobb pumpáló energia (piros görbék) esetén.

Látható, hogy nagyobb pumpáló- és THz-es impulzus energia esetén a THz-es impulzus időben későbbi részén az oszcilláció amplitúdója lecsökken a kezdeti amplitúdóhoz képest. Ez a csökkenés közepes hőmérsékleten a legjelentősebb. Ezek a megfigyelések összhangban vannak annak feltételezésével [9], hogy a fonon-polaritonok (a THz-es impulzusok a LiNbO<sub>3</sub>-ban) akusztikus fononokká történő kényszerített bomlása játszódik le.

Publikációk bemutatása:

Az útmutatónak megfelelően csak azt az egy konferencia kiadványt szerepeltetjük a közlemények jegyzékében, amely olyan eredményt mutat be, amelyet még nem publikáltunk referált folyóiratban. Mivel a költségvetés „Külföldi utazás, konferencia részvétel” rovata jelentős túlköltséget mutat (a teljes költségvetésben nincs túlköltség) fontosnak tartom leírni, hogy az OTKA projekt eredményeit bemutattuk összesen 10 előadáson a legnagyobb nemzetközi lézeres konferenciákon (CLEO, QUELS, Ultrafast Phenomena). Az egyik előadás színvonala lehetővé tette, hogy a Postdeadline szekcióban szerepeljen.

A 11 db referált folyóiratcikk összesített impakt faktora (IF) 26, az átlagos IF 2,3, és az összesített IF/OTKA költségvetés arány 4.3 IF/MFt.